

Institut für Reaktorwerkstoffe  
KERNFORSCHUNGSANLAGE JÜLICH  
des Landes Nordrhein-Westfalen

Diffusion von Leerstellen in Eisen-Silizium  
unter Bestrahlung mit schnellen Neutronen

von

H. - D. Dietze und E. Balthesen

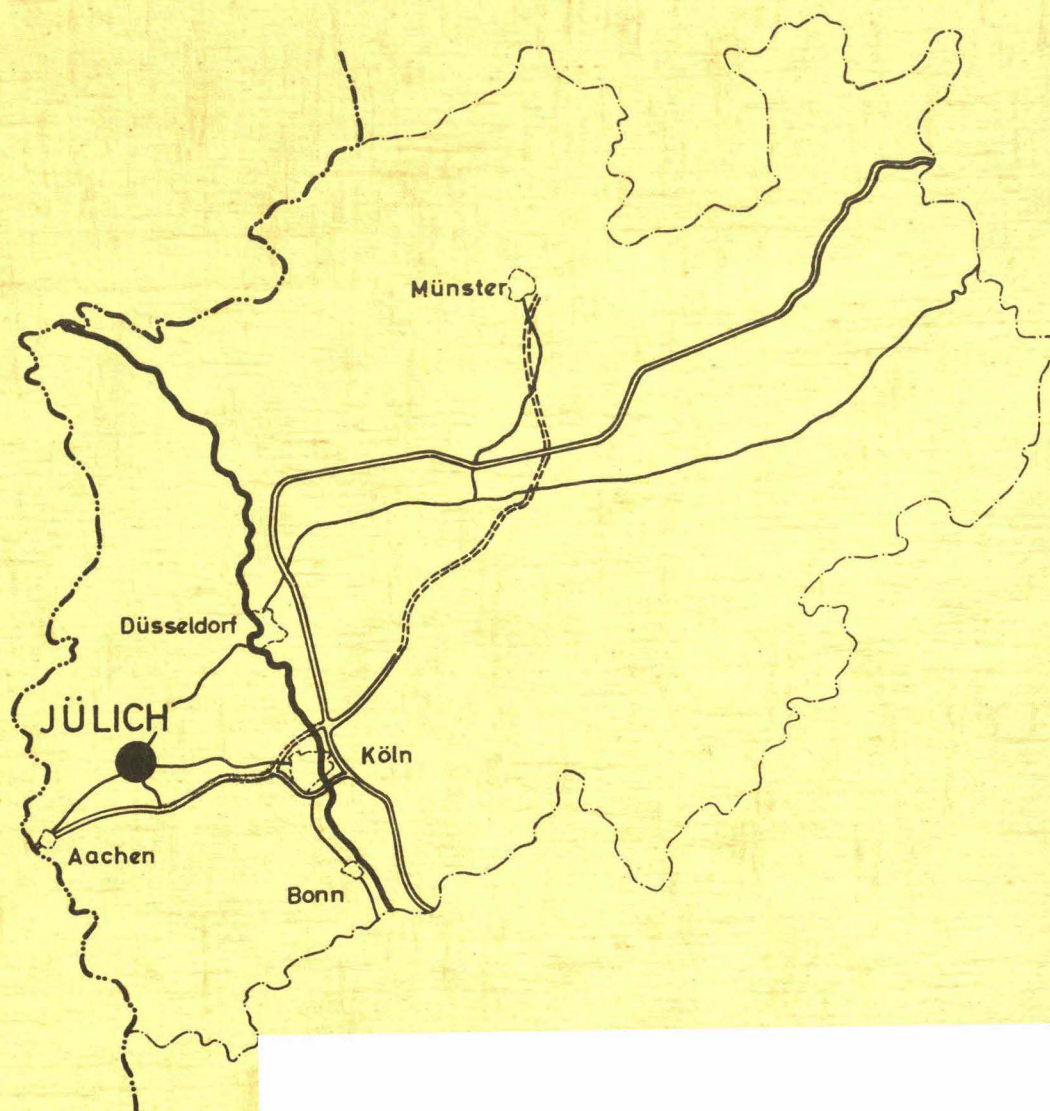
Jül - 15 - RW

April 1961

**Sonderdruck**

aus „Nukleonik“, 3. Band, 3. Heft, 1961, S. 93–98 Springer-Verlag, Berlin · Göttingen · Heidelberg





**Berichte der Kernforschungsanlage Jülich - Nr. 15**

Institut für Reaktorwerkstoffe Jül - 15 - RW

Dok.: FERROMAGNETIC MATERIALS - RADIATION EFFECTS

DK 539.245 : 539.1.12 : 539.125.5

Zu beziehen durch: ZENTRALBIBLIOTHEK der Kernforschungsanlage Jülich,  
Jülich, Bundesrepublik Deutschland

## Diffusion von Leerstellen in Eisen-Silizium unter Bestrahlung mit schnellen Neutronen

Von H.-D. DIETZE und E. BALTSESEN

(Aus dem Institut für Reaktorwerkstoffe der Kernforschungsanlage Jülich)

Mit 2 Textabbildungen

(Eingegangen am 4. April 1961)

**Zusammenfassung.** Die magnetische Nachwirkung an Eisen mit 3% Silizium gestattet ein Studium der Erzeugung und der Diffusion von Leerstellen. Ohne Bestrahlung sind diese Untersuchungen schon vor längerer Zeit durchgeführt worden. Bei Bestrahlung im Reaktor werden neben den thermischen Leerstellen weitere Leerstellen erzeugt. Oberhalb 400° C überwiegen die thermischen Leerstellen, und die Selbstdiffusionskonstante zeigt den üblichen Anstieg mit der Temperatur. Unterhalb 400° C überwiegen die durch Strahlungseffekte erzeugten Leerstellen. Es stellt sich ein Gleichgewicht zwischen Erzeugung und Vernichtung der Leerstellen ein, was zu einer temperaturunabhängigen Selbstdiffusionskonstanten führt. Unterhalb 280° C fällt die Selbstdiffusionskonstante wieder ab, da sich hier das Gleichgewicht zwischen Erzeugung und Erholung noch nicht eingestellt hat.

### 1. Einleitung

Eisen und niedrig legiertes Eisen zeigen bei Temperaturen oberhalb 350° C eine magnetische Nachwirkung, die von FAHLENBRACH [1] und Mitarbeitern [2], [3] eingehend untersucht wurde. Besonders gut eignet sich zur Untersuchung dieser Nachwirkung eine Eisenlegierung mit 3% Silizium, da dieses Material sich mit Goß-Textur (Walzebene (110), Walzrichtung [001]) herstellen läßt und daher einfache magnetische Verhältnisse vorliegen. Die daraus hergestellten Ringbandkerne enthalten vorwiegend 180° Blochwände, die sich beim Magnetisierungsprozeß bewegen. Außerdem ist das Material sehr grobkörnig, wodurch Störungen infolge von Korngrenzeneffekten vermieden werden. Diese magnetische Nachwirkung äußert sich in einem zeitlichen Abfall der Anfangspermeabilität unmittelbar nach dem Entmagnetisieren der Probe. DIETZE [4] versuchte diese Erscheinung durch die Diffusion von Leerstellen zu deuten. Danach soll eine Leerstelle in der Blochwand eine andere Energie als außerhalb dieser haben. Wird angenommen, daß die Leerstellenenergie in der Wand niedriger als außerhalb ist, so werden im Gleichgewicht in der Wand mehr Leerstellen als außerhalb sein. Unmittelbar nach dem Entmagnetisieren wird man mit einer überall konstanten Leerstellenkonzentration zu rechnen haben. Mit der Zeit werden dann Leerstellen in die Blochwand diffundieren, so daß diese in einer zusätzlichen Potentialmulde liegt, die zum Abfall der Permeabilität führt.

Die vollständige Behandlung des Problems beruht im wesentlichen auf der Lösung der Diffusionsgleichung für dieses Modell und vermag die Experimente quantitativ gut zu beschreiben. Als wesentliche Größen gehen die im thermischen Gleichgewicht vorhandene Leerstellenkonzentration und die Diffusionskonstante der Leerstellen ein.

Das Modell gestattet, aus den Meßwerten die Aktivierungsenergie der Selbstdiffusion sowie deren Aufteilung in Bildungsenergie und Aktivierungsenergie für Wanderung einer Leerstelle getrennt zu bestimmen.

Die Aktivierungsenergie für Selbstdiffusion in Eisen mit 3% Silizium ergibt sich zu 3,3 eV. Dabei beträgt der Anteil der Aktivierungsenergie für Leerstellenwanderung 2,4 eV und der Anteil der Bildungsenergie 0,9 eV.

In dieser Arbeit soll über Untersuchungen dieser Nachwirkung unter gleichzeitiger Bestrahlung mit schnellen Neutronen berichtet werden. Da bei den Meßtemperaturen die Erholungsprozesse der Strahlungseffekte sehr schnell ablaufen, kann man nur bei gleichzeitiger Bestrahlung einen bemerkenswerten Einfluß erwarten. Die Konzentration der durch Strahlungseffekte erzeugten Leerstellen wird ein Gleichgewicht zwischen Erzeugung und Vernichtung der Leerstellen sein. Da die Erzeugung der Leerstellen temperaturunabhängig ist und nur von der Bestrahlungsintensität abhängt, dagegen aber die Vernichtung mit fallender Temperatur abnimmt, wird die Konzentration mit fallender Temperatur zunehmen. Andererseits nimmt im thermischen Gleichgewicht die Konzentration ab, so daß von einer bestimmten Temperatur abwärts im wesentlichen nur noch die durch Bestrahlung erzeugten Leerstellen und oberhalb dieser Temperatur nur die durch die thermische Bewegung erzeugten Leerstellen wirksam sind. Die magnetische Nachwirkung infolge Leerstellendiffusion bietet ein bequemes experimentelles Verfahren, diese Erscheinungen zu beobachten.

Von LOMER [5] ist bereits die Leerstellen- und Zwischengitteratom-Diffusion bei Bestrahlung eingehend diskutiert worden. Wir werden bei der Diskussion unserer Ergebnisse näher darauf eingehen. Außerdem liegen experimentelle Untersuchungen von DIENES und DAMASK [6] an  $\alpha$ -Messing vor. Diesen Messungen liegt die Vorstellung zugrunde, daß die Änderung des Nahordnungsgrades in dieser Legierung durch Diffusion erfolgt. Der Nahordnungsgrad wurde dabei durch Widerstandsmessung bei Temperaturen des flüssigen Stickstoffs relativ gemessen. Die Proben wurden durch Tempern bei 210° C in thermisches Gleichgewicht gebracht, anschließend bei Temperaturen unterhalb 200° C verschiedene Zeiten im



Reaktor bestrahlt, und danach die Änderung des Nahordnungsgrades durch Widerstandsmessung bestimmt. Die Ergebnisse sind unseren eigenen sehr ähnlich, und wir werden in der Diskussion noch darauf eingehen.

## 2. Versuchsanordnung

Es wurde eine technische Eisen-Silizium-Legierung der Zusammensetzung

$$C < 0,01\%, \text{ Si etwa } 3\%, \text{ Mn } 0,2\%, \text{ Cr } 0,1\%$$

untersucht. Das Material bestand aus 0,35 mm dickem Band und hatte Goß-Textur. Dieses Band

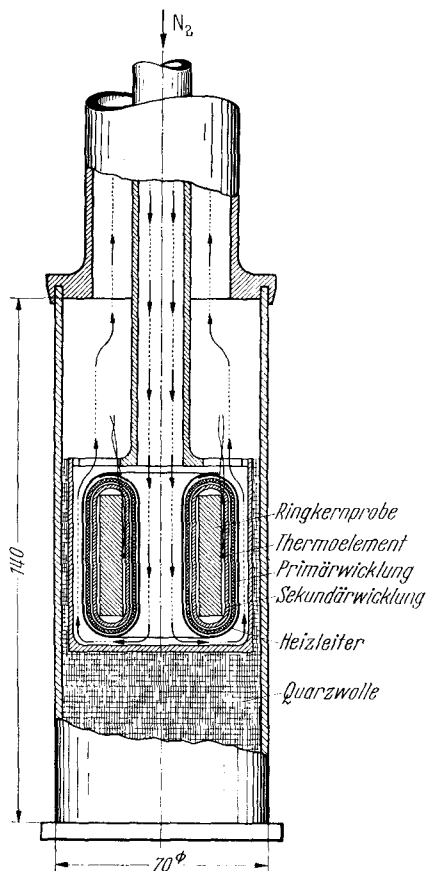


Abb. 1. Bestrahlungskammer (schematisch)

wurde zu Ringkernen gewickelt und bei 1100° C unter Wasserstoff 2 Std geglüht. Nach dieser Behandlung hatte das Material bei 20° C eine relative Anfangspermeabilität von über 1000.

Der Ringkern wurde mit zwei Meßwicklungen und einer Heizwicklung versehen (Abb. 1). Unter diesen Wicklungen waren zwei Eisen-Konstantan-Thermoelemente an der Innen- und Außenseite des Kerns angebracht. Alle Drähte waren mit Glasseide isoliert.

Die Messungen unter Bestrahlung wurden am FRM in München-Garching vorgenommen. Der leichtwassermoderierter Swimming-Pool-Reaktor eignet sich besonders gut für diese Messungen, da der hohe  $\gamma$ -Fluß zur Heizung der Probe ausgenutzt werden kann. Die Probe wurde dazu in eine Aluminiumkammer eingebaut, die am Ende eines langen Zuleitungsrohres hängend, durch das Kühl- und Abschirmungswasser zum Reaktorkern hinuntergelassen werden konnte. Die Kammer konnte mit einem Dorn nach unten in

der Grundplatte des Reaktorkerns in definierten Abständen vom Kernrand verankert werden. Die Bestrahlung wurde in zwei Positionen vorgenommen, wobei die Probe 4 cm bzw. 12 cm vom Kernrand entfernt war.

Der thermische Neutronenfluß betrug am Kernrand etwa  $10^{13}$  Neutronen/cm<sup>2</sup> sec und nahm nach 15 cm um eine Größenordnung ab. Der totale schnelle Fluß betrug in 5 cm Abstand vom Kernrand etwa  $2 \cdot 10^{12}$  Neutronen/cm<sup>2</sup> sec, wobei etwa 25% auf Neutronen über 3,5 MeV entfallen.

Die Temperatureinstellung in der Probe erfolgte mit Hilfe der  $\gamma$ -Strahlenerwärmung, des elektrischen Heizleiters und einer Gaskühlung. Die  $\gamma$ -Heizung, die in der kernnahen Position etwa 0,5 W/g betrug, stellte einen Ausgangswert der Probestemperatur von etwa 450° C und in der anderen Position von 300° C ein. Tieferen Temperaturen wurden mit Hilfe einer Stickstoffgaskühlung erreicht. Dazu wurde handelsüblicher Stickstoff aus Stahlflaschen durch einen Kunststoffschlauch in die Kammer gepreßt, der die Probe umspülte und durch das Zuführungsrohr an den Zuleitungen vorbei zurückgeführt und in den Abluftkanal der Reaktorhalle geleitet wurde. Die Gasmenge und damit die gewünschte Temperatur wurden an Ventilen eingestellt. Die Aktivierung des Kühlgases war vernachlässigbar gering.

Temperaturen über dem Ausgangswert der  $\gamma$ -Heizung wurden durch elektrische Heizung erreicht. Diese Heizung mußte während der Messung zur Vermeidung magnetischer Störfelder abgeschaltet werden. Die Temperatur konnte jedoch hinreichend lange konstant gehalten werden, da die Bestrahlungskammer mit Quarzglaswolle gefüllt war, welche die Wärmeabstrahlung herabsetzte.

Vor jeder Messung wurde die Probe mit einem Wechselstrom (50 Hz) abnehmender Amplitude entmagnetisiert und unmittelbar danach über die Primärwicklung eine Meßfeldstärke (500 Hz) von 1,11 mOe gegeben. Über die Sekundärwicklung wurde auf einem Oszillographen die zeitliche Änderung der Induktion gemessen. Daraus läßt sich dann leicht die Permeabilität als Funktion der Zeit bestimmen.

## 3. Theorie zur Auswertung der Versuchsergebnisse

Die wesentlichen Grundlagen der Theorie sind schon in [4] angegeben worden. Jedoch ist wegen der Bestrahlung eine Modifikation notwendig, weshalb hier die Theorie noch einmal kurz skizziert werden soll.

Das Material soll im entmagnetisierten Zustand parallele 180°-Wände im äquidistanten Abstand  $b$  enthalten, die jeweils entgegengesetzt magnetisierte Bereiche trennen. Diese Voraussetzung ist bei dem von uns benutzten Material einigermaßen erfüllt. Jede Wand befindet sich in einer Energiemulde  $E(x, t)$ , wobei die  $x$ -Koordinate die Lage der Wand kennzeichnet. Dabei soll für eine herausgegriffene Wand das Energieminimum bei  $x = 0$  liegen.

Für die reziproke Permeabilität läßt sich aus diesem Modell leicht die Beziehung

$$\frac{1}{\mu(x, t)} = \frac{1}{4} \frac{\mu_0}{J_s^2} \frac{b}{x} \frac{\partial E}{\partial x} \quad (3.1)$$

\* Wir rechnen hier in dem rationalen ( $4\pi$ -freien) System mit vier Grundeinheiten. Zum Beispiel gilt für die Induktion  $B = \mu_0 H + J$ .

ableiten. Darin bedeuten  $J_s$  die Sättigungsmagnetisierung,  $\mu_0$  die Induktionskonstante und  $x$  die Auslenkung der Blochwände aus ihren Gleichgewichtslagen durch das äußere Meßfeld.  $E$  ist die Energie pro Flächeneinheit, die die Wand an der Stelle  $x$  zur Zeit  $t$  hat. Da wir sehr kleine Meßfeldstärken benutzen, können wir uns in (3.1) auf die Anfangspermeabilität ( $x \rightarrow 0$ ) beschränken:

$$\frac{1}{\mu_a(t)} = \frac{1}{4} \frac{\mu_0}{J_s^2} \lim_{x \rightarrow 0} \frac{b}{x} \frac{\partial E}{\partial x}. \quad (3.2)$$

Die Energiemulde  $E(x, t)$  setzt sich aus einem zeitunabhängigen Anteil  $E_g(x)$  und einem zeitabhängigen Anteil  $E_n(x, t)$  zusammen. Dabei beschreibt  $E_g(x)$  alle energetischen Einflüsse auf die Blochwand, die nicht mit der Leerstellendiffusion zusammenhängen (z. B. innere Spannungen) und zeitunabhängig sein sollen. Die Nachwirkungsenergie  $E_n(x, t)$  soll durch die Diffusion der Leerstellen in die Blochwand erzeugt werden. Bezeichnen wir mit  $\varepsilon(x)$  die Energie einer einzelnen Leerstelle bezüglich einer Blochwand, wobei die Wandmitte an der Stelle  $x=0$  liegt, und mit  $n(x, t)$  die Zahl der Leerstellen pro Volumeneinheit, so erhalten wir für die Nachwirkungsenergie

$$E_n(x, t) = \int_{-\infty}^{+\infty} n(x', t) \varepsilon(x' - x) dx'. \quad (3.3)$$

$\varepsilon(x)$  soll dabei die Energiedifferenz einer Leerstelle an der Stelle  $x$  in der Blochwand und in unendlich großem Abstand von der Wand sein. Diese Energiefunktion hängt im wesentlichen von der Struktur der Wand ab und läßt sich in der Form

$$\varepsilon(x) = -\varepsilon_1 f\left(\frac{x}{\delta}\right) \quad (3.4)$$

beschreiben, wie in [4] gezeigt wurde. Dabei ist  $\varepsilon_1$  nur noch von der Temperatur abhängig und gibt den vierten Teil der Energiedifferenz einer Leerstelle in der Mitte der Wand und in unendlich großem Abstand von der Wand an.  $\delta$  ist die Breite der Wand, die ebenfalls nur von der Temperatur abhängt [7]:

$$\delta = \frac{J_s}{2J_0} \sqrt{\frac{kT_c}{aK_1}}. \quad (3.5)$$

Darin sind  $J_s$  die spontane Magnetisierung bei der Temperatur  $T$ ,  $J_0$  die bei  $0^\circ \text{K}$ ,  $T_c$  die Curie-Temperatur,  $a$  die Gitterkonstante,  $K_1$  die Kristallenergiekonstante und  $k$  die Boltzmann-Konstante (vgl. auch [8]). Schließlich hängt die dimensionslose Funktion  $f(\xi)$  nur noch vom Wandtyp und der kristallographischen Orientierung der Wand ab. Sie ist proportional der Energiedichte der Blochwand und verschwindet exponentiell für große Argumente. Für unseren Fall haben wir praktisch nur einen Wandtyp in einer kristallographischen Orientierung vorliegen, so daß wir für alle Wände mit der gleichen Funktion  $f(\xi)$  rechnen dürfen. In unser Ergebnis wird der spezielle Verlauf von  $f(\xi)$  nicht eingehen, so daß wir auf eine genauere Diskussion verzichten können.

Wir haben nun noch die Diffusionsgleichung für  $n(x, t)$  aufzustellen, die gegenüber [4] erweitert werden muß. Zunächst haben wir einen Term, der eine zeitliche Änderung von  $n$  infolge des Konzentrationsgefälles hervorruft und die Form  $D \frac{\partial^2 n}{\partial x^2}$  hat, wo  $D$  die Diffusionskonstante für Leerstellen bedeutet.

Außerdem erzeugt die Blochwand ein Energiegefälle  $\varepsilon(x)$  für die Leerstellen, was eine zeitliche Änderung der Größe  $\frac{D}{kT} \frac{\partial}{\partial x} \left( n \frac{\partial \varepsilon}{\partial x} \right)$  hervorruft [9]. Darüber hinaus haben wir noch einen Quellterm  $q$  hinzuzufügen, der die Erzeugung von Leerstellen durch die Bestrahlung beschreibt und orts- und zeitunabhängig ist. Ebenso müssen wir die Senken für die Leerstellen durch einen Term  $-s$  berücksichtigen, dessen Formulierung wesentlich von dem Mechanismus der Vernichtung der Leerstellen abhängt. Wir werden später verschiedene Modelle diskutieren.  $n(x, t)$  genügt also der Gleichung

$$\frac{\partial n}{\partial t} = D \left[ \frac{\partial^2 n}{\partial x^2} + \frac{1}{kT} \frac{\partial}{\partial x} \left( n \frac{\partial \varepsilon}{\partial x} \right) \right] + q - s. \quad (3.6)$$

Die Anfangsbedingung ist durch die Versuchsführung gegeben. Da das Material vor jeder Messung entmagnetisiert wird, wird sich am Ende dieses Prozesses ( $t=0$ ) eine Leerstellenkonzentration  $n_0$  einstellen, die unabhängig von den Blochwänden ist und daher überall konstant ist. Sie ist durch das Gleichgewicht  $q=s$  gegeben. Voraussetzung dafür ist, daß die Entmagnetisierung schnell genug ausgeführt wird, damit noch keine merkliche Diffusion der Leerstellen in die Wände eingetreten ist. Die Randbedingung für das Problem ist durch die Forderung gegeben, daß  $n$  für  $x \gg \delta$  in die Gleichgewichtskonzentration  $n_0$  einmündet, wobei wir diese Forderung auch für  $x = \pm \infty$  stellen können, ohne einen großen Fehler zu begehen. Wir formulieren also als Anfangs- und Randbedingung

$$n(x, 0) = n_0, \quad n(\pm \infty, t) = n_0. \quad (3.7)$$

Bei unserer Formulierung sind wir davon ausgegangen, daß nur die Leerstellen den Nachwirkungs-effekt erzeugen und nicht die Zwischengitteratome. Wegen der hohen Beweglichkeit der Zwischengitteratome wird eine solche Nachwirkung bei wesentlich tieferen Temperaturen auftreten. Vermutlich ist eine der von MOSER und DAUTREPPE [10] beobachteten Nachwirkungen an bestrahltem Eisen die Zwischengitteratommachwirkung. An Nickel ist sie von KRONMÜLLER, SEEGER und SCHILLER [11] sicher gefunden und theoretisch gedeutet worden. Der Mechanismus dieser Nachwirkung ist jedoch anders als bei unserer Leerstellennachwirkung.

Die Lösung der Gl. (3.6) hängt nun entscheidend von der Annahme ab, die man über  $s$  macht, d. h. von dem Modell, welches man für die Vernichtung der Leerstellen wählt. Nur zur Zeit  $t=0$ , wo  $q=s$  ist, wird man unabhängig davon. Zwar wird  $n_0$  noch von dem Mechanismus der Leerstellenvernichtung abhängen, aber  $n_0$  geht dann nur noch als Temperaturfunktion ein. Aus (3.6) folgt dann

$$\left( \frac{\partial n}{\partial t} \right)_{t=0} = \frac{n_0 D}{kT} \frac{d^2 \varepsilon}{dx^2}. \quad (3.8)$$

Wenn wir uns nun in (3.2) auf die Messung der Anfangssteigung der reziproken Anfangspermeabilität beschränken, so benötigen wir wegen (3.3) nur den Ausdruck (3.8). Wir erhalten durch Einsetzen

$$\begin{aligned} \left( \frac{d}{dt} \frac{1}{\mu_a(t)} \right)_{t=0} &= \frac{1}{4} \frac{\mu_0}{J_s^2} \frac{n_0 D}{kT} \lim_{x \rightarrow 0} \frac{b}{x} \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{d^2 \varepsilon(x')}{dx'^2} \frac{\partial \varepsilon(x' - x)}{\partial x} dx'. \end{aligned}$$

Da  $\varepsilon(x)$  eine symmetrische Funktion in  $x$  ist, können wir dies in

$$\left(\frac{d}{dt} \frac{1}{\mu_a(t)}\right)_{t=0} = \frac{1}{4} \frac{\mu_0}{J_s^2} \frac{n_0 D}{k T} b \int_{-\infty}^{+\infty} \left(\frac{d^2 \varepsilon}{dx^2}\right)^2 dx \quad (3.9)$$

umformen. Benutzen wir noch die spezielle Gestalt (3.4) für  $\varepsilon(x)$ , so erhalten wir

$$\left(\frac{d}{dt} \frac{1}{\mu_a(t)}\right)_{t=0} = \frac{1}{4} A_2 \frac{\mu_0}{J_s^2} \frac{\varepsilon_1^2}{k T} \frac{b}{\delta^3} n_0 D, \quad (3.10)$$

wobei die Konstante

$$A_2 = \int_{-\infty}^{+\infty} \left(\frac{d^2 f(\xi)}{d\xi^2}\right)^2 d\xi \quad (3.11)$$

ist. Sie hängt nur vom Wandtyp und der kristallographischen Wandorientierung ab. Für unser spezielles Problem wurde sie in [4] zu  $A_2 = 0,3836$  berechnet.

Die Gl. (3.10) gestattet nun die Größe  $n_0 D$  durch Messung der linken Seite der Gleichung zu bestimmen,

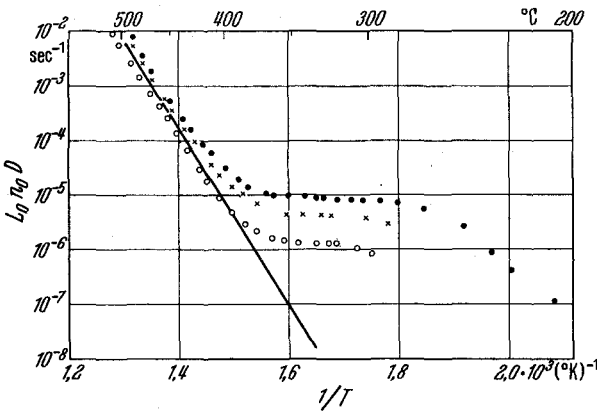


Abb. 2. Logarithmische Auftragung der nach Gl. (3.16) ausgewerteten Meßergebnisse über der reziproken Temperatur

— — — — — Ohne Bestrahlung;  
 ● ● ● ● ● Bestrahlung 4 cm vom Kernrand;  
 × × × × × Bestrahlung 12 cm vom Kernrand

wobei besonders der Temperaturgang interessiert. Der Faktor

$$L(T) = \frac{1}{4} A_2 \frac{\mu_0}{J_s^2} \frac{\varepsilon_1^2}{k T} \frac{b}{\delta^3} \quad (3.12)$$

ist eine reine Temperaturfunktion und läßt sich aus dem Temperaturgang der ferromagnetischen Größen bestimmen. Lediglich die Größe  $\varepsilon_1$  ist dabei problematisch. In [4] wurde angenommen, daß sie proportional der Kristallenergiekonstanten ist. Neuere Messungen, über die an anderem Ort berichtet werden soll, haben gezeigt, daß dies oberhalb 300° C richtig ist, aber unterhalb 300° C Abweichungen auftreten. In der Auswertung der vorliegenden Versuchsergebnisse ist diese Abweichung berücksichtigt worden.

Wir beziehen für die Auswertung die Größe (3.12) auf ihren Wert bei 400° C, den wir mit  $L_0$  bezeichnen. Werden alle temperaturabhängigen Größen in (3.12) bei 400° C mit dem Index Null versehen, so ist

$$L_0 = \frac{1}{4} A_2 \frac{\mu_0}{J_{s0}^2} \frac{\varepsilon_{10}^2}{k T_0} \frac{b}{\delta_0^3}. \quad (3.13)$$

Wir definieren nun

$$l(T) = \frac{L(T)}{L_0}, \quad (3.14)$$

was dann wegen (3.5) die Form

$$l(T) = \frac{T_0}{T} \left(\frac{J_{s0}}{J_s}\right)^5 \left(\frac{K_1}{K_{10}}\right)^{\frac{1}{2}} \left(\frac{\varepsilon_1}{\varepsilon_{10}}\right)^2 \quad (3.15)$$

hat. Der Temperaturgang dieser Größe läßt sich leicht aus den Daten in der Literatur [8] und den Messungen für  $\varepsilon_1$  bestimmen. Damit kann aus den Meßergebnissen die Größe

$$\frac{1}{l(T)} \left(\frac{d}{dt} \frac{1}{\mu_a(t)}\right)_{t=0} = L_0 n_0 D \quad (3.16)$$

bestimmt werden, die im folgenden Abschnitt diskutiert werden soll.

#### 4. Versuchsergebnisse und Diskussion

In Abb. 2 sind die nach Gl. (3.16) umgerechneten Meßergebnisse logarithmisch über  $1/T$  aufgetragen. Zum Vergleich ist das Meßergebnis ohne Bestrahlung als Gerade ohne Meßpunkte eingetragen. Alle Meßpunkte sind an der gleichen Probe gewonnen worden. Zwei Meßreihen sind mit einem Probenabstand von 4 cm und eine Meßreihe mit einem Probenabstand von 12 cm vom Reaktorkernrand gemacht worden. Oberhalb 400° C zeigen die Meßpunkte im wesentlichen das gleiche Ergebnis wie die Messungen ohne Bestrahlung. Jedenfalls stimmen die Steigungen der Aktivierungsgeraden gut überein. Für die Abweichung der Absolutwerte haben wir bisher keine brauchbare Erklärung finden können.

Unterhalb 400° C biegen die Meßpunkte in eine fast horizontale Gerade ein. Ob die schwache Neigung reell ist, vermögen wir noch nicht zu entscheiden, da sie auch durch die Ungenauigkeit in der Bestimmung des Temperaturgangs von  $\varepsilon_1$  vorgetäuscht sein kann. Wir werden aber gleich noch auf die physikalische Bedeutung einer solchen Neigung eingehen. Unterhalb 280° C setzt dann wieder ein starker Abfall der Meßpunkte ein, und bei 200° C ist die Grenze der Empfindlichkeit der Meßapparatur erreicht.

Alle Messungen wurden bei gleicher nomineller Reaktorleistung durchgeführt. Trotzdem zeigen die beiden Meßreihen, die mit mehreren Tagen Abstand ausgeführt wurden, in der Position von 4 cm Abstand einen erheblichen Unterschied. Wir führen das auf einen Unterschied im Neutronenfluß zurück, der sich auch in einem starken Unterschied der  $\gamma$ -Strahlen-Heizung bemerkbar machte.

Die beiden eingebauten Thermoelemente zeigten, daß die Probe nicht gleichmäßig temperiert war. Der Unterschied zwischen den beiden Thermoelementen betrug im Durchschnitt etwa 4° C. In Abb. 1 sind immer die mittleren Temperaturen eingetragen.

Ein Vergleich mit den Ergebnissen von DIENES und DAMASK [6] zeigt eine gute Übereinstimmung, so daß wir die physikalische Deutung der Messungen im wesentlichen übernehmen können. Diese Deutung schließt sich an eine theoretische Untersuchung von LOMER [5] an.

Die Gleichgewichtskonzentrationen  $n_0$  der Leerstellen ohne Blochwände setzt sich aus der durch die thermische Bewegung erzeugten Leerstellenkonzentration

$$n_{0T} = N e^{-\frac{Q_0}{kT}} \quad (4.1)$$

und der durch Bestrahlung erzeugten Konzentration  $n_{0S}$  zusammen:

$$n_0 = n_{0T} + n_{0S}. \quad (4.2)$$

Hierbei bestimmt sich  $n_{0S}$  aus dem Gleichgewicht  $q = s$ . In (4.1) bedeuten  $Q_b$  die Bildungsenergie für eine Leerstelle und  $N$  die Zahl der Gitterplätze pro Volumeneinheit.

Die Bestimmung von  $n_{0S}$  hängt nun wesentlich von dem Modell für die Vernichtung der Leerstellen ab. DIENES und DAMASK [6] diskutieren zwei Möglichkeiten. Einmal können die Leerstellen zu festen Senken diffundieren, für die im wesentlichen die Versetzungen angesehen werden.  $s$  wird dann proportional der Diffusionskonstanten  $D$  für die Leerstellen und proportional der Leerstellenkonzentration sein:

$$s = \alpha D n_{0S}. \quad (4.3)$$

Die Konstante  $\alpha$  läßt sich, wie bei DIENES und VINEYARD [12] gezeigt ist, mit der Versetzungsdichte verknüpfen:

$$\alpha = \frac{2\pi A}{\ln\left(\frac{r_1}{r_0}\right)}. \quad (4.4)$$

Hierin sind  $A$  die Versetzungsdichte,  $r_1$  der halbe mittlere Abstand der Versetzungen und  $r_0$  der Vernichtungsradius für die Leerstellen um die Versetzungslinien, der in der Größenordnung des Burgers-Vektors liegt. Bei gut rekristallisiertem Material wird  $\alpha$  in der Größenordnung von  $10^5 \text{ cm}^{-2}$  liegen. Die Gleichgewichtskonzentration bestimmt sich damit zu

$$n_{0S} = \frac{q}{\alpha D}. \quad (4.5)$$

Der zweite Mechanismus, der bei DIENES und DAMASK [6] diskutiert wird, ist die Rekombination von Leerstellen mit Zwischengitteratomen. Nimmt man auch hierfür eine Diffusionstheorie, so wird  $s$  einmal proportional der Diffusionskonstanten  $D'$  für Zwischengitteratome sein, da wegen der hohen Beweglichkeit der Zwischengitteratome die Leerstellen als feste Senken angesehen werden können, ferner proportional den Konzentrationen der Leerstellen und der Zwischengitteratome. Die beiden Konzentrationen können wir gleich setzen und erhalten so den Ansatz

$$s = \beta D' n_{0S}^2, \quad (4.6)$$

wobei wir nach DIENES und VINEYARD [12]

$$\beta = 4\pi r_0 \quad (4.7)$$

setzen können.  $r_0$  ist der Vernichtungsradius der Leerstellen für die Zwischengitteratome und in der Größenordnung der Gitterkonstanten. Damit erhalten wir

$$n_{0S} = \left(\frac{q}{\beta D'}\right)^{\frac{1}{2}}. \quad (4.8)$$

Die Interpretation der Meßpunkte in Abb. 1 ist nun leicht durchzuführen. Oberhalb  $400^\circ \text{C}$  überwiegt die Zahl der thermisch erzeugten Leerstellen. Mit

$$D = D_0 e^{-\frac{Q_w}{kT}}, \quad (4.9)$$

wobei  $Q_w$  die Aktivierungsenergie für die Wanderung einer Leerstelle ist, ergibt sich

$$n_0 D \approx N D_0 e^{-\frac{Q_b + Q_w}{kT}}. \quad (4.10)$$

Der Anstieg der Aktivierungsgeraden stimmt mit dem Anstieg der ohne Bestrahlung gemessenen Geraden überein. Unterhalb  $400^\circ \text{C}$  werden die durch Bestrahlung erzeugten Leerstellen überwiegen und es ergibt sich mit dem Ausdruck (4.5)

$$n_0 D \approx \frac{q}{\alpha} \quad (4.11)$$

(Vernichtung durch Diffusion zu festen Senken).

Dieser Ausdruck ist unabhängig von der Temperatur, während für (4.8) sich

$$n_0 D \approx \left(\frac{q}{\beta D'}\right)^{\frac{1}{2}} D \quad (4.12)$$

(Vernichtung durch Rekombination)

ergibt. Der Ausdruck (4.12) fällt aber noch stark mit der Temperatur ab, da  $D'$  einmal eine kleinere Aktivierungsenergie als  $D$  besitzt und außerdem noch unter der Wurzel steht. Wenn man von der schwachen Steigung der Meßpunkte absieht, entscheiden die Experimente eindeutig für Gl. (4.11), was auch durch die Experimente von DIENES und DAMASK [6] gefunden wurde, wobei dort die Messungen keine schwache Neigung erkennen lassen. Ob sich die Neigung in unseren Experimenten als ein schwacher Anteil an Rekombination deuten läßt, kann erst nach genaueren Messungen von  $\varepsilon_1$  entschieden werden.

Der unterhalb  $280^\circ \text{C}$  einsetzende Abfall von  $n_0 D$  wurde von DIENES und DAMASK [6] nicht beobachtet, aber von LOMER [5] vorausgesagt. Hier sind die Bestrahlungszeiten offenbar nicht mehr lang genug, damit sich das Gleichgewicht zwischen Erzeugung und Vernichtung einstellen kann. Die Leerstellenkonzentration muß aus der Gleichung

$$\frac{dn_S}{dt} = q - \alpha D n_S \quad (4.13)$$

berechnet werden. Wird zur Zeit  $t=0$  die Bestrahlung begonnen, so hat man zur Zeit  $t$  die Konzentration

$$n_S = n_{0S}(1 - e^{-\alpha D t}). \quad (4.14)$$

Man kann also durch Messungen in Abhängigkeit von der Bestrahlungszeit die Größe  $\alpha D$  bestimmen. Solche Versuche sind für die nächste Zeit geplant.

Wir können nun aus (4.11) und unserem Meßergebnis in Abb. 2 den Wert  $q/\alpha$  gewinnen, indem wir aus Abb. 2 die Werte  $L_0 n_0 D$  an der Stelle entnehmen, wo diese Größe praktisch temperaturunabhängig ist. Mit den Zahlenangaben in [4] erhalten wir für  $L_0 = 4,5 \cdot 10^{-9} \text{ cm}$ . Nehmen wir noch für  $\alpha$  den Wert  $10^5 \text{ cm}^{-2}$  an, so erhalten wir aus Abb. 1 die folgenden Werte:

Position	$L_0 n_0 D$ [sec <sup>-1</sup> ]	$q/\alpha$ [cm <sup>-1</sup> sec <sup>-1</sup> ]	$q$ [cm <sup>-3</sup> sec <sup>-1</sup> ]
4 cm	$9 \cdot 10^{-6}$	$2 \cdot 10^3$	$2 \cdot 10^8$
4 cm	$5 \cdot 10^{-6}$	$1 \cdot 10^3$	$1 \cdot 10^8$
12 cm	$1,4 \cdot 10^{-6}$	$3 \cdot 10^2$	$3 \cdot 10^7$

Man kann nun andererseits aus dem schnellen Neutronenfluß den Wert  $q$  abschätzen. Wir verwenden dazu die gleichen Zahlen wie DIENES und DAMASK [6], die für einen schnellen Fluß von  $10^{12} \text{ cm}^{-2} \text{ sec}^{-1}$  die Größe  $q/N = 10^{-10} \text{ sec}^{-1}$  ( $N$  = Zahl der Gitterplätze pro Volumeneinheit) setzen. Mit  $N = 8,2 \cdot 10^{22} \text{ cm}^{-3}$

ist bei einem schnellen Fluß von  $2 \cdot 10^{12}$  Neutronen/ $\text{cm}^2 \text{sec}^{-1}$  in der Position mit 4 cm Abstand vom Reaktorkernrand  $q \approx 2 \cdot 10^{13} \text{ cm}^{-3} \text{sec}^{-1}$ . Das ist ein Unterschied gegenüber den oben angegebenen Zahlen um den Faktor  $10^5$ , der auch von DIENES und DAMASK [6] gefunden wird. DIENES und DAMASK geben ohne nähere Begründung an, daß  $\alpha$  den Wert  $10^{10} \text{ cm}^{-2}$  haben soll. Dies würde bedeuten, daß das Modell der Leerstellenvernichtung durch Diffusion zu den Versetzungen in dieser Form falsch ist.

Wir können noch einen anderen Gesichtspunkt angeben, wonach  $\alpha$  tatsächlich nicht  $10^5 \text{ cm}^{-2}$ , sondern um viele Größenordnungen größer ist. Nach Gl. (4.14) ist  $1/\alpha D$  die Zeitkonstante für die Einstellung des Gleichgewichts der Leerstellenkonzentration. Entnimmt man aus [4]  $D = 1,4 \cdot 10^{-14} \text{ cm}^2 \text{sec}^{-1}$  für  $400^\circ \text{C}$ , so erhält man mit  $\alpha = 10^5 \text{ cm}^{-2}$  für die Zeitkonstante bei dieser Temperatur etwa  $7 \cdot 10^8 \text{ sec}$ . Dies würde bedeuten, daß sich selbst bei  $400^\circ \text{C}$  kein Gleichgewicht einstellen würde, was aber im Widerspruch zu den Experimenten steht. Selbst der Wert  $\alpha = 10^{10} \text{ cm}^{-2}$  scheint noch um eine Größenordnung zu klein zu sein. Eine experimentelle Klärung dieser Frage erhoffen wir uns aus der Messung der Zeitkonstanten  $1/\alpha D$ .

Einen physikalischen Grund für diese Diskrepanz vermögen wir nicht anzugeben.

Herrn Dr. L. KÖSTER und Herrn Dr. W. MARTH am FRM in München-Garching möchten wir für die Erlaubnis und Unterstützung zur Durchführung der Versuche auch an dieser Stelle recht herzlich danken.

Herrn Dr. H. FAHLENBRACH (Friedr. Krupp Widia-Fabrik, Essen) danken wir für die Herstellung der Proben.

**Literatur:** [1] FAHLENBRACH, H.: *Naturwissenschaften* **14**, 302 (1944). — *Ann. Phys.* (6) **2**, 355 (1948). — [2] FAHLENBRACH, H., u. G. SOMMERKORN: *Techn. Mitt. Krupp* **15**, 161 (1957). — [3] HELLBARDT, G.: *Techn. Mitt. Krupp* **18**, 25 (1960). — [4] DIETZE, H.D.: *Techn. Mitt. Krupp* **17**, 67 (1959). — *Berichte der Arbeitsgemeinschaft Ferromagnetismus*, S. 21. Stuttgart 1958. — [5] LOMER, W.M.: *AERE Rep. T/R. 1540*, Harwell 1954. — [6] DIENES, G.H., and A.C. DAMASK: *Sec. Un. Nat. Internat. Conf. Atomic Energy*, Genf 1958, 15/P/612. — *J. Appl. Phys.* **29**, 1713 (1958). — [7] NÉEL, L.: *Cah. Phys.* **25**, 1 (1944). — [8] BOZORTH, R.M.: *Ferromagnetism*. New York 1951. — [9] FRENKEL, J.I.: *Statistische Physik*. Berlin 1957. — [10] MOSER, P., u. D. DAUTREPPE: *CEA-Rep. 1624*, Grenoble 1960. — [11] KRONMÜLLER, H., A. SEEGER u. P. SCHILLER: *Z. Naturforsch.* **15a**, 740 (1960). — [12] DIENES, G.J., and G.H. VINEYARD: *Radiation Effects in Solids*, S. 143. New York 1957.